

산화물 초전도체의 자기적 특성 발생 메커니즘

이 상 현*

선문대학교 공과대학 전자공학부

Occurrence Mechanism of Magnetic Properties in BiSrCaCuO Superconductor

Sang Heon Lee*

Department of Electronic Engineering, Sun Moon University, Asan, Chung Nam, Korea 336-708

(Received October 20, 2006; Accepted December 14, 2006)

Abstract An electromagnetic properties in BiSrCaCuO superconductor were studied. In the measurement of current-voltage properties, the voltage was measured when applying an external magnetic field. The voltage continues to appear after the removal of the magnetic field. This phenomenon was considered as a nonvolatile magnetic effect. The voltage increased with the applied magnetic flux, but it became constant at about 10^{-2} T. The appearance of the voltage was ascribed to the trapping of magnetic flux.

Keywords : Electromagnetic effect, Magnetic flux, BiSrCaCuO, Grain boundary

1. 서 론

1986년 고온 초전도체의 발견은 산업전반에 걸친 무한한 응용 가능성 때문에, 학문적인 측면뿐만 아니라, 초전도 소자들의 실현을 위해 electronics, computer technology 및 반도체와 초전도 현상을 응용한 hybrid 소자 등 다양한 분야에서 전 세계적으로 연구되고 있다¹⁻³⁾. 이와 같이 고온 초전도체의 응용은 현대 산업의 많은 분야에서 시도되고 있으며 그 중 가장 실용화에 근접되어 있는 것으로 초전도 센서 분야가 주목을 받고 있다. 이는, 초전도 상태에서 상전도 상태로 혹은 상전도 상태에서 초전도 상태로의 변화할 때 발생하는 저항의 변화를 디바이스의 동작으로 응용할 수 있기 때문이다. 고온 초전도체의 전자 소자로서의 응용은 초전도 산업화를 위해서도 대단히 중요한 의미를 갖는다⁴⁻⁶⁾.

BiSrCaCuO계 초전도체에는 외부로부터 자계를 인가하면 전압이 발생하게 되는데 외부 자계를 소거한 후에도 출력전압이 유지되는 물리적 현상이 있다. 이

현상은 다결정 입계로 구성되어 있는 산화물 초전도체가 갖는 특징이며 자계를 인가함과 동시에 초전도체에서 발생하는 출력전압이 변화하는 현상을 주목하면 간단한 초전도 자기 검출소자로서 응용할 수 있는 가능성을 내포하고 있다. 따라서 본 연구에서는 초전도 상태에 있는 시료가 자속에 의한 메모리의 기입이 가능하며 이러한 자기적 효과가 초전도체에 트랩된 자속과 밀접하게 관계되어 있는 것을 조사하여, 초전도체의 자속 트랩 현상을 이용한 공학적 응용에 대하여 정성적으로 설명하고자 한다.

2. 실험방법

시료는 99.9% 순도의 Bi_2O_3 , SrCO_3 , CaCO_3 , CuO , Pb_3O_4 분말을 소성하여 출발 조성이 $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.2}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 가 되도록 평량한 후 질산에 용해하였다. 본 용액에 시트르산 및 에틸렌글리콜을 첨가하였다. 첨가한 시트르산은 용액 중에 포함되어 있는 금속 이온의 총 원자가수를 계산하여 필요량을 첨가하였다. 에

*Corresponding Author : [Tel : +82-41-530-2357; E-mail : shlee@sunmoon.ac.kr]

틸렌글리콜은 금속 시트르산염이 에틸렌글리콜과 탈수 중합 반응을 일으키므로 polymer상 화합물 생성의 최적비를 계산하여 필요량을 첨가하였다. 본 원료 용액을 약 90°C의 hot plate에서 2시간 동안 가열 및 교반하였다. 반응 종료 후 전기로에서 350°C에서 2시간 동안 가열하여 전구체를 얻었다. 전구체 분말을 가압 성형하여 860°C로 20시간 열처리하면 최종적으로 고온 초전도체가 얻어진다. 온도에 따른 저항 변화를 측정하기 위하여 측정 부분에 실리콘 다이오드 온도 센서를 설치하여 온도변화와 저항과의 관계를 AC 4단자법을 이용하여 전기저항을 측정하였다. 전류 및 전압 단자는 접촉저항을 줄이기 위하여 In을 전극 재료로 사용하였고, 리드선은 약 0.08 mmΦ의 구리선을 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서 제작한 BiSrCaCuO계 초전도 시료의 전류-전압 특성의 결과를 그림 1에 나타내었다.

특성 (A)는 외부로부터 자계를 인가하지 않는 경우의 특성이며, 저항값은 0.067 Ω이 된다. 액체질소 온도에서는 전류가 425 mA까지 전압강하가 관측되지 않으나, 임계전류 ($I_c=425$ mA) 보다 큰 전류를 인가하면 초전도 시료의 양단에서는 전압이 발생한다. 이것은 초전도체를 흐르는 전류와 더불어 발생한 자계로 인하여 초전도 영역의 일부가 상전도 영역으

로 천이된 결과로 생각된다. 시료의 주위 온도를 77K로 하고 그림 1의 삽입도에서와 같이 BiSrCaCuO계 초전도 시료에 외부로부터 0.1 T의 자계를 인가하면 특성 (A)는 일점체선으로 표시된 특성 (B)로 변화된다.

즉, 자계 인가로 인하여 초전도 시료의 저항이 증가되고 동시에 전압도 증가하게 된다. 다음으로 외부 자계를 소거하면 시료에서 발생하는 전압은 감소하나 원래의 특성 (A)의 상태로는 돌아가지 않고 (C)의 특성에 머무르게 되며 임계전류는 감소하게 된다. 이 상태에서 전압을 0으로 하고 다시 전압을 인가하여도 동작점은 (C)의 특성을 나타낸다. 이러한 자기 현상은 초전도 시료가 77K를 유지하는한 지속되나, 시료를 일단 상온으로 되돌려 상전도 상태로 하면 소거된다. 그러나 초전도 시료를 77K로 냉각하여 외부 자계를 인가한 후에는 다시 특성 (C)가 얻어져 자기 특성이 재현된다. 이러한 자기 현상은 자석의 N극과 S극에 대하여도 같은 정도로 발생하게 된다.

자계인가에 의해서 초전도체에는 전압이 출력되나, 그 메커니즘에 대하여는 다음과 같이 생각할 수 있다. 고온 초전도체는 다결정 입체로 구성되어, 이들 많은 입체는 초전도의 약결합으로 가정할 수 있다. 인가되는 자계가 작을 경우는 초전도 전류는 Josephson 효과에 의해 약결합을 저항이 발생하지 않는 상태로 통과할 수 있다. 그러나, 어느 일정한 값 이상의 자계가 인가되면, 초전도 전류는 이들 약결합

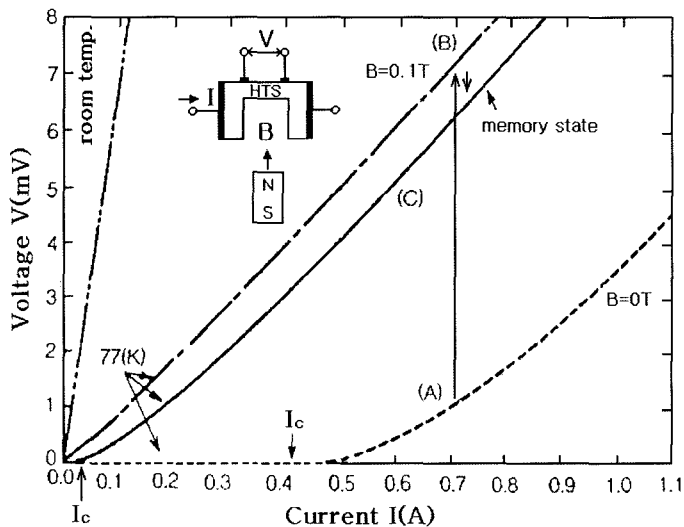


Fig. 1. Current-voltage characteristics.

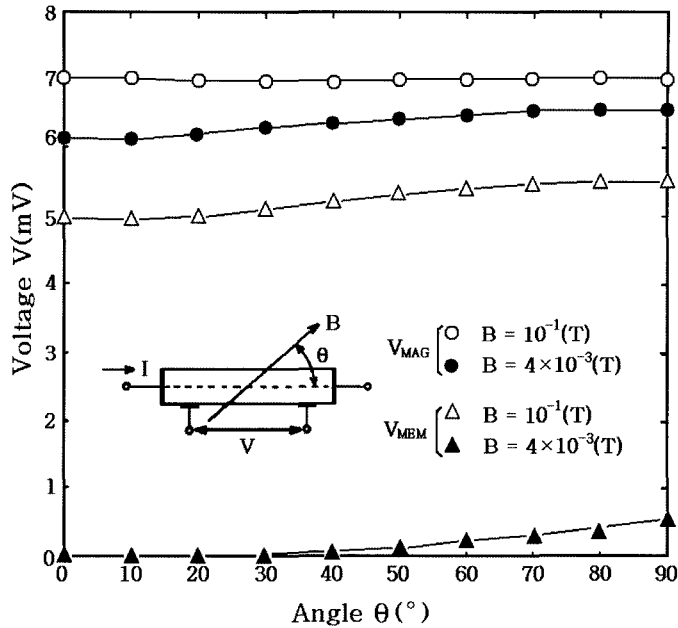


Fig. 2. Dependence of the voltage Δ on the angle θ between magnetic field and current flow. Symbols V_{MAG} and V_{MEM} are the voltage measured from the non-memorized and memorized samples, respectively.

을 저항 0의 상태로 통과할 수 없게 되어 저항이 발생하게 된다. 이 원인으로 다음과 같은 요소가 생각된다.

- (i) 자계에 의한 약결합 부분의 초전도 상태변화
- (ii) 자계에 의한 초전도 상태의 coherence 길이 감소.
- (iii) 자계에 의하여 유기된 차폐 전류에 의한 약결합 파괴.
- (iv) 전류에 의하여 유기된 내부전계가 (i), (ii)에 미치는 영향.

이러한 요소에 대한 상세한 검토는 앞으로 연구를 계속 진행하여 규명해 갈 필요가 있다. 앞에서 설명한 바와 같이 산화물 초전도체에는 결정입계가 다수 존재하며, 결정입계에 의해서 Josephson 접합이 형성되어 있다고 생각된다. 이를 회로 모델로 대응하여 보면 접합은 직렬, 병렬로 입체적이며 복잡하게 접속된 회로라고 할 수 있다. 또한 결정 입계의 결합정도에 의해 Josephson 접합의 자기적 특성이 다르다고 하면 초전도 시료에 인가되는 자계의 강도가 커짐에 따라 Josephson 접합에서 저항이 발생되므로 저항이 발생하는 접합수가 증가하게 된다. 따라서 초전도 시료에서 자계의 증가에 의하여 발생하는 전압은 증가

하게 된다.

초전도 시료가 외부자계의 영향으로 전압이 발생하는 현상에 대하여는 앞서 설명하였다. 그러나, 본 시료와 같이 초전도 소결체의 경우, 일반적인 Nb_3Sn 와 같은 초전도체와는 다른 특이점을 들 수 있다. 그림 2은 초전도 시료에 인가되는 자계의 방향과 전압과의 관계를 나타낸 결과이다. 그림에서 초전도체에서 발생하는 전압은 인가되는 자계의 방향성에는 크게 의존하지 않는 것으로 생각할 수 있다. 초전도 시료에 흘리는 전류에 대하여, 외부자계를 수직 또는 수평한 방향으로 인가하여도 전압(V_{MAG})은 발생하며, 외부자계를 제거한 후, 자속이 메모리 된 상태에서도 전압(V_{MEM})은 발생하였다.

그림 3은 외부 자계 인가에 따른 자속밀도 B 에 대한 V_M 의 변화를 나타낸 결과이다. V_M 은 초전도체에 임계전류를 흘리면서 자장을 인가하였을 때 시료에서 발생하는 전압을 의미한다.

자속 밀도가 2×10^{-3} T까지는 전압강하의 증가분 V_M 은 자계를 제거함과 동시에 자계를 인가하기 이전의 상태로 되돌아 온다. 그러나 2×10^{-3} T 이상의 자속밀도 영역에서는 외부 자계를 제거하여도 전압강하는 0이 되지 않는다. 그림 3의 곡선으로부터, 자속

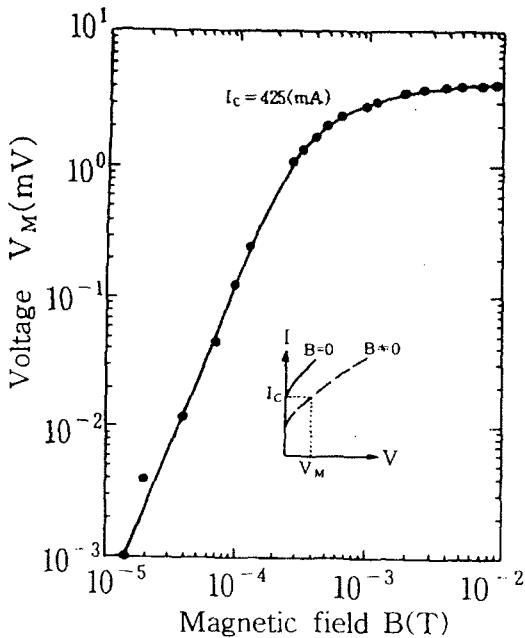


Fig. 3. The dependence of V_M on the density of magnetic flux B .

밀도 B 가 3×10^{-4} T보다 크게 되면 V_M 은 포화되는 경향을 알 수 있다. V_M 의 포화치는 4 mV가 된다. 선형영역에서 10^{-4} T의 자계를 인가하면, V_M 은 약 125 μ V가 된다.

한편 1 μ V의 출력으로는 약 1.5×10^{-5} T의 자기가 검출된다. 이 값은 지구자기와 비교해서 거의 같은 정도의 세기를 나타낸다. I_c 를 425 mA로 일정하게 했을 때 V_M 이 125 μ V이므로, 전기저항은 자계인가에 의하여 0으로부터 2.9×10^{-4} Ω 으로 증가된 결과가 되며, 자속밀도의 변화에 의한 전기저항의 변화는 2.9 Ω/T 가 된다.

자기적 상태에 있는 초전도 시료에 2×10^{-3} T 이하의 외부 자계를 인가하면서 초전도 시료의 전류-전압특성을 조사한 결과를 그림 4에 나타낸다.

그림 4에서는 0.1 T의 강한 N극을 초전도 시료에 접근시켜 시료의 특성변화를 나타낸다. 초전도 시료에 인가한 자극과 같은 방향으로 약 2×10^{-3} T의 약한 N극을 초전도 시료에 인가하면 전압은 감소되고 초전도체에 인가된 자극과 반대 방향의 약한 S극을 인가하면 시료의 전압은 증가하였다. 강한 S극으로 메모리 시킨 경우의 약한 자계의 역할은 정반대가 된다. 이 약한 N극과 S극은 이미 초전도 시료에 트랩

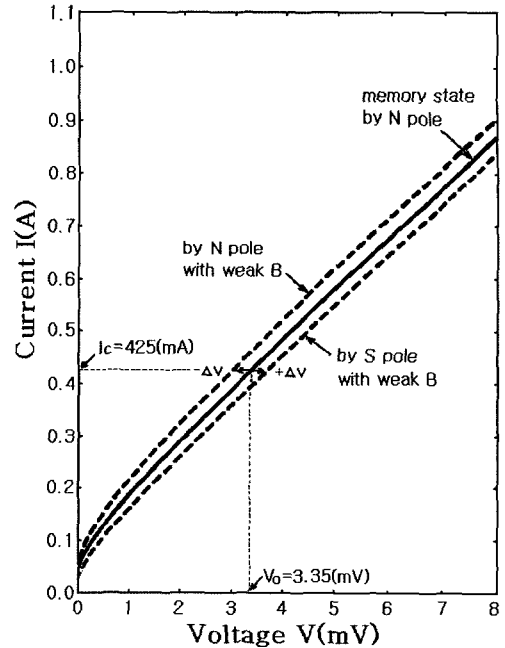


Fig. 4. Current-voltage characteristics of the sample memorized by placing North pole near to it. Symbols $+\Delta$, and $-\Delta$, mean the increases and the decrease in the voltage across the sample, respectively.

되어 있는 자속을 맘게 하거나 또는 적게 하는 기능을 하며 서로 반대의 작용을 하고 있다. 본 연구에서 대상으로 하고 있는 BiSrCaCuO 초전도체는 분말을 소결하여 제작한 시료이므로 내부에는 많은 격자결합이 발생하며 산화물 등의 화학적 불순물이 다수 존재하는 것으로 사료된다. 이점은 본 시료가 임계온도 이하에서 초전도 상태가 되는 영역과 상전도 상태를 유지하는 영역 또는 자기적 효과를 발생하는 자속을 트랩하는 영역으로 혼합되어 있는 제 2종 초전도체를 의미한다. 제 2종 초전도체의 전압 발생 메커니즘에 대하여는 여러 이론이 발표 되어있으나 본 연구에서는 산화물 초전도체의 자기적 효과의 발생 메커니즘으로서 초전도 소결체의 격자 결합과 결정입계의 결합강도를 고려한 필라멘트 모델을 제안한다. 또한 제작된 시료의 전류-전압 특성이 필라멘트 모델로 정성적으로 해석이 가능함을 설명한다.

본 시료는 초전도 영역이 필라멘트 상으로 구성되어 있고, 이 필라멘트가 시료 내부를 그물망처럼 복잡하게 연결되어 있다고 생각된다. 그 이유는 본 시료가 소결체이면 입자 간에는 많은 공공이 존재하며

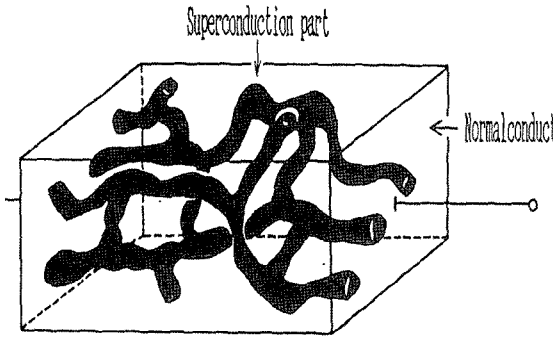


Fig. 5. A hypothetical representation of current path in the superconducting oxide material.

초전도 영역은 입자들이 접촉되어 연결된 형태이므로 결과적으로 그물망과 같은 초전도가 전류 경로가 발생하는 현상은 충분히 고려할 수 있다. 이러한 상태를 그림 5에서 모델화하였다.

이 점을 고려하여 초전도 소결체의 전압 발생 모델을 구체적으로 고찰한다.

그림 6에는 필라멘트 형상을 고려한 전압발생 모델을 나타낸다. 초전도 소결체는 미세한 입자들의 집합체이므로 시료내부에는 초전도간에 결합강도가 강한 부분과 약 결합 부분이 혼합되어 존재한다.

본 논문에는 그림 6(I)에서와 같이 그물망 형태로 되어있는 필라멘트형의 초전도 영역을 2개의 필라멘트 A, B로 간단화한다. 초전도 필라멘트 A, B 이외의 영역은 상전도 상태로 한다. 그림 중의 표시는 초전도체 내부에 포함되어 있는 결합을 나타낸다. 필라멘트 A, B의 두터운 부분과 가는 부분을 각각 초전도 입자간의 결합강도가 강한 부분과 약결합 부분을 의미한다. 그림 6(II)는 그림 1의 전류-전압 특성을 간략화하였다.

그림 6(I)의 (a)는 외부자장을 인가하지 않은 상태에서 임계전류 이하의 전류를 시료에 흘린 경우로서 이 상태에서는 시료내부의 초전도 영역은 필라멘트 상으로 단자 간을 연결하고 있으므로 전류-전압 특성은 그림 6(II)의 (a)에 해당한다. 이 경우 시료의 단자간 전압은 0이 된다.

그림 6(I)의 (b)는 외부로부터 자장을 시료에 인가한 경우로서, 외부 자장에 의한 자속(B_{ext})이 초전도 시료를 관통하고 있다. 시료에 인가된 자속밀도가 증가하면 필라멘트 초전도 영역 A, B에도 자속이 진입

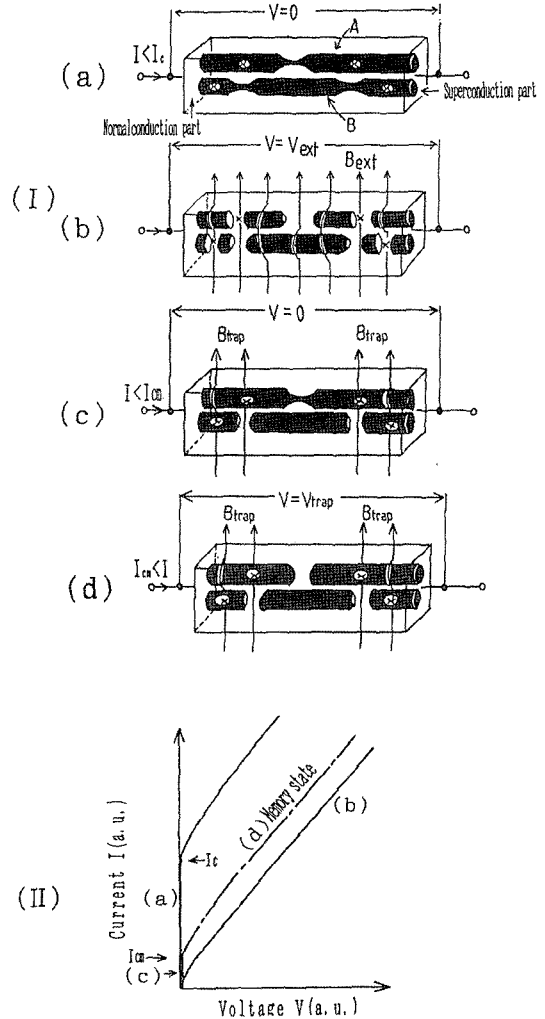


Fig. 6 Model responsible for the occurrence of the voltage across the sample caused by applied magnetic field.

하게 되어 초전도 입자간의 약 결합 부분은 파괴되어 상전도 영역으로 천이한다. 그 결과로서 시료에 전류를 흘리면 시료의 양 단자 간에는 전압 강하 (V_{ext})가 발생되어 전류-전압 특성은 그림 6(II)의 (b)와 같은 특성을 나타낸다.

그림 6(I)의 (c)는 초전도 시료에 인가되었던 외부자장을 소가한 후 시료가 자기적 상태로 되었을 때 임계 전류(I_{cm}) 이하의 전류를 흘린 경우를 나타낸다. 이 상태에서는 필라멘트 내부의 결합 부분에는 자속이 트랩 되어 있으나 결합이 없는 부분은 자속이 소거되어 초전도 상태로 회귀된다. 그러나 결합에 트랩

된 자속(Btrap)의 인접한 초전도 필라멘트의 가는 부분(약 결합 부분)에 영향을 미치게 되므로, 결합에 트랩된 자속과 초전도 필라멘트의 가는 부분이 그림 6(I)의 (c)에서와 같이 배치되면 초전도 필라멘트 B의 가는 부분은 파괴된다. 그런 필라멘트 A의 초전도 영역은 시료의 양 단자 간을 연결하고 있어 시료의 초전도성은 유지된다. 이 상태의 전류-전압 특성은 그림 6(II)의 (c)에 해당하며 초전도 시료의 단자간 전압은 0이 된다. 메모리된 시료에서는 초전도 영역의 실효 전류 경로의 단면적이 감소하므로 그 경로에 있어서의 전류 밀도는 증가한다. 따라서 시료의 임계 전류는 감소하게 된다. 이 감소된 임계 전류보다 큰 전류를 초전도체에 흘리면 전압 단자 간에는 전압이 발생하게 된다.

이 설명을 그림 6(I)의 (d)에 나타낸다. 그림 6(I)의 (d)는 그림 6(I)의 (c)의 상태에서 자기메모리 상태의 임계 전류값 I_{cm} 이상의 전류를 시료에 흘린 경우로서 초전도 필라멘트 B는 초전도 필라멘트 A에 트랩된 자속으로 인하여 이미 파괴되어 있으며 필라멘트 A의 가는 부분도 I_{cm} 이상의 전류를 시료에 흘림으로서 파괴되어 상전도성을 나타나게 된다. 결과적으로 초전도 시료 단자를 연결하는 초전도 필라멘트 A, B는 모두 분단되므로 시료 단자 간에는 전압(Vtrap)이 발생한다. 이 상태의 전류-전압 특성은 그림 6(II)의 (d)에 해당한다.

자속의 트랩 현상이 유지되는 한 전압 Vtrap은 발생하게 되며 이 점이 자기적 효과를 발생하는 주된 요인으로 작용한다. 초전도 소결체에서 관측되는 자기적 현상은 소결체 내부의 초전도 영역이 인가전류 및 자계에 의하여 변화하므로 발생하는 현상이다. 이외에도 자기적 효과의 발생 메카니즘으로서 외부 자장으로 인하여 시료 내부에 트랩된 자속이 미치는 영향만을 고려한 현상도 생각할 수 있다. 그러나 이 경우에는 본 시료와 같은 초전도 소결체 내부의 전류 유송을 저해하는 약 결합의 영향이 고려되지 않

는다. 따라서 이 메카니즘에 의하면 본 시료에서 발생하는 전압 강하는 소결체 내부의 약 결합과 관계 없이 발생하게 된다. 그러므로 본 연구에서는 초전도 소결체의 자기적 효과의 발생 메카니즘으로서 자속이 트랩 현상과 소결체 내부의 약결합의 영향을 고려한 필라멘트 모델을 제안한다.

4. 결 론

전류-전압 특성에 있어서 초전도 시료에 외부 자계를 인가하면 전압 단자간에는 전압이 발생하며 외부 자계를 소거한 이후에도 전압이 발생하며 외부 자계를 소거한 이후에도 전압이 출력되는 자기적 효과가 관측되었다. 자기적 효과는 시료 내부에 트랩된 자속으로 인하여 발생하는 현상을 실험적으로 증명하였다. 관측된 자기적 효과를 초전도 필라멘트 모델에 적용하여 정성적으로 해석하였다. 자기적 효과는 외부 자계 및 초전도 시료에 트랩된 자속의 상호 작용으로 인하여 초전도 소결체 내부의 약결합 부분이 파괴되어 발생하는 현상으로 판단되었다.

참고문헌

1. J. G. Bednorz and K. A. Muller: Z. Phys., **B64** (1986) 189.
2. M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Trong, P. H. Hor, R. L. Gao, I. J. Huang, Y. Q. Wang and C. W. Chu: Phys. Rev. Lett., **58** (1987) 908.
3. R. V. Peterson and J. W. Ekin: Phys. Rev., **B37** (1988) 9848.
4. P. England, T. Venkatesan, X. D. Wu and A. Inam: Phys. Rev., **B38** (1988) 7121.
5. H. Kupter, S. M. Green, C. Jiang, Y. Mei, H. L. Luo, R. Meier-Hirmer and C. Politis: Z Phys, **B71** (1988) 63.
6. B. V. Reddi, K. Jian and B. K. Das: Solid State Commun., **68** (1988) 841.